

МНОГОКРАТНО РЕЦИКЛИРАНЕ НА ПЛУТОНИЙ В РЕАКТОР С ВОДА ПОД НАЛЯГАНЕ: ИЗМЕНЕНИЕ НА ИЗОТОПНИЯ СЪСТАВ

Златина Манчева, Ивайло Найденов

MULTIPLE PLUTONIUM RECYCLE IN A PRESSURISED WATER REACTOR: ISOTOPIC COMPOSITION CHANGE

Zlatina Mancheva, Ivaylo Naydenov

The global plutonium stock amounts to 530 tHM of which 310 tHM are civilian material. Plutonium management is an important issue since all uranium fuelled reactors produce plutonium. One option is to recycle the plutonium in the form of mixed oxide fuel and burn it in pressurized water reactors. That would allow utilizing plutonium's energy content using well developed technologies. The current paper examines plutonium isotopic composition change in the case of multiple recycle in a reference PWR.

Въведение

Към началото на 2019 г. натрупаните материални запаси от плутоний в световен мащаб се оценяват на около 530 тона тежък метал, от които около 59% (310 tHM) са с граждански произход [1]. За управлението на тези количества могат да бъдат обобщени три подхода – съхранение за неопределен срок в съоръжения с висока степен на физическа защита, имобилизация в стъклена или керамична матрица и погребване и производство на смесени уран-плутониеви горива и изгаряне на плутония в енергийни реактори [2]. От гледна точка на намаляване на запасите от плутоний и оползотворяването на енергийното му съдържание, подходящ е третият подход.

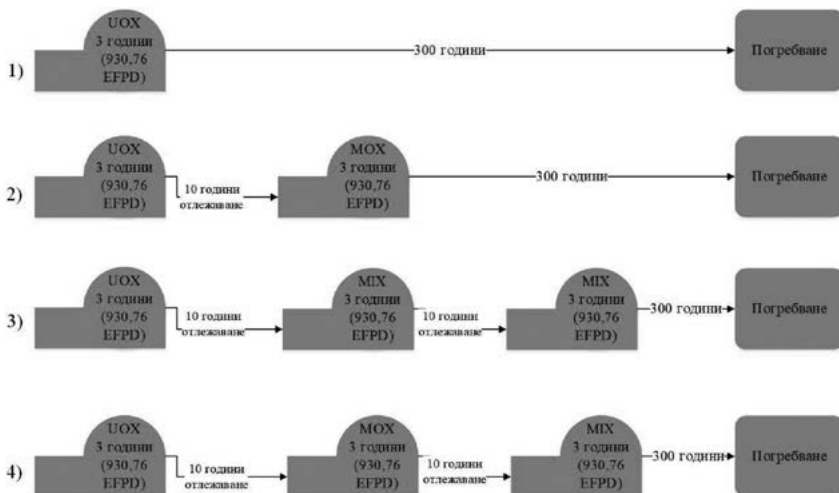
МОХ горивата за леководни реактори съдържат от 4 wt.% до 10 wt.% плутоний [3]. Най-често за изработката на смесени уран-плутониеви горива се използва обеднен уран. Това позволява да се увеличи концентрацията на плутония в горивото поради ниското съдържание на дялящи се изотопи в обеднения уран [4]. Разновидност на смесените уран-плутониеви горива, използваща обогатен, вместо обеднен уран, е известна под наименованията MOXEUS (MOX Enriched Uranium Support), MOX-UE (MOX-Uranium Enrichi) или MIX. Това гориво е подходящо за многократно рециклиране на плутония в реактори с вода под налягане, тъй като в него основният дялящ се изотоп е ^{235}U . По този начин неутронно-физичните

характеристики на горивото се доближават до тези на урановото гориво, а същевременно се компенсира загубата на реактивност от влошаването на изотопния състав на плутония при многократно облъчване [3,5]

Постановка на задачата

Целта на изследването е да се направи сравнителен анализ между четири горивни цикъла - един отворен и три частично затворени по отношение на плутония. Те са показани схематично на Фигура 1. Анализът включва определяне на изотопните състави на плутония и общите материални баланси, както и анализ на остатъчното енергоотделяне триста години след крайното извеждане на горивото. За извършване на пресмятанията, необходими за постигане на целите на задачата, е използван кодът ORIGEN [6].

И в четирите случая началото на горивния цикъл започва от референтен реактор с вода под налягане с електрическа мощност 1000 MW, който използва за гориво уранов диоксид с обогатяване 4,8%, проектна дълбочина на изгаряне 62 000 MWd/tM. При частично затворените цикли след извеждане на горивото от активната зона, то отлежава 10 години преди да се подложи на преработка за извличане на плутония и производство на смесено уран-плутониево гориво. Избрани са два варианта на смесено оксидно гориво – традиционни MOX касети и съвременната концепция MIX. Разгледаните горивни цикли са:



Фигура 1. Постановка на задачата

1. Вариант 1: отворен горивен цикъл; отработеното ядрено отлежава 300 години;

2. Вариант 2: еднократно рециклиране на плутония под формата на MOX и последващо отлежаване от 300 години на отработеното MOX;

3. Вариант 3: двукратно рециклиране на плутония под формата на MIX гориво, с междинни отлежавания от 10 години и крайно отлежаване на отработеното MIX гориво от 300 години;

4. Вариант 4: двукратно рециклиране на плутония, първоначално под формата на MOX, а след това във вид на MIX гориво, с междинни отлежавания от 10 години и крайно отлежаване на отработеното MIX гориво от 300 години.

Задачата е формулирана така, че да е възможно да се оценят ефектите от използването на различни уран-плутониеви горива в сравнение с отворен горивен цикъл.

Изчислителни средства

Кодът ORIGEN (Oak Ridge Isotope Generation) е разработен от Националните лаборатории „Оук Ридж“, САЩ и се прилага за изчисляване на нуклидни композиции и активност на продукти на делене, продукти на активация и дъщерни продукти от трансмутация на тежки метали. Той е широко използван в световната ядрена индустрия и е с висок верификационен статус. Версията на кода, поддържана понастоящем, е последната му версия – ORIGEN-S. Основното подобрение при нея е възможността да се използват многогрупови сечения на взаимодействие в зависимост от решаваната задача, както и енергийно зависими добиви на продуктите на делене. Прилаганите библиотеки включват данни за 2226 нуклида, които могат да бъдат получени чрез неутронна активация, делене или разпад [6].

Входни данни за анализа

Входните данни за изчисленията са подбрани, съобразно типови характеристики на съответните горивни цикли, използвани за анализ в [5,7]. Те са представени в Таблица 1. В нея с N е обозначена електрическата мощност на ядрения енергиен блок, MW; с η – брутният термодинамичен к.п.д. на ядрения енергиен блок; с B – специфичното енергоизработване (дълбочина на изгаряне), MWd/tTM; с ϕ – коефициентът на използване на инсталираната мощност на ядрения енергиен блок; с x – работното обогатяване, с y – концентрацията на ^{235}U в обеднения уран; с w_{Pu} – относителният дял на плутоний в горивото, с T_k – календарното време, години.

Таблица 1. Входни данни

Гориво	N	η	B	ϕ	x	y	w_{Pu}	T_k
	<i>MW</i>	%	<i>MWd/tTM</i>	%	<i>wt. %</i>	<i>wt. %</i>	<i>wt. %</i>	ГОДИНИ
UOX	1000,0	33,0	62 000,0	85,0	4,8	-	-	3,0
MOX	1000,0	33,0	62 000,0	85,0	-	0,3	7,0	3,0
MIX	1000,0	33,0	62 000,0	85,0	4,8	-	7,0	3,0

Обобщените входни данни са представени таблично в Таблица 2.

Таблица 2. Обобщени входни данни

Параметър	Дименсия	UOX	MOX	MIX
Електрическа мощност	<i>MW</i>	1000,00	1000,00	1000,00
Брутен термодинамичен к.п.д.	%	33,00	33,00	33,00
Дълбочина на изгаряне	<i>MWd/tTM</i>	62 000	62 000	62 000
Коефициент на използване на инсталираната мощност	%	85,00	85,00	85,00
Работно обогатяване	<i>wt. %</i>	4,80	-	4,80
Концентрация на ^{235}U в обеднения уран	<i>wt. %</i>	-	0,30	-
Относителен дял на плутония в горивото	<i>wt. %</i>	-	7,00	7,00
Календарна кампания на горивото	ГОДИНИ	3,00	3,00	3,00
Ефективна кампания на горивото	<i>EFPD</i>	930,75	930,75	930,75
Маса на горивото	<i>tTM</i>	45,49	45,49	45,49
Маса на обогатения уран	<i>tTM</i>	45,49	-	42,31
Маса на заредения плутоний	<i>tTM</i>	-	3,18	3,18
Маса на използвания обеднен уран	<i>tTM</i>	-	42,31	-
Топлинна мощност	<i>MW</i>	3030,30	3030,30	3030,30
Брутно електропроизводство	<i>TWh</i>	22,338	22,338	22,338
Средна масова енергонапегнатост	<i>MW/tTM</i>	66,61	66,61	66,61

Въз основа на входните данни от Таблица 1 и Таблица 2 и с помощта на кода ORIGEN са пресметнати концентрациите на плутониевите изотопи в отработеното гориво за всяка горивна кампания. В Таблица 3 е обобщен изотопният състав на плутония на десетата година след отлежаването на отработеното ядрено гориво, използван за производство на смесените горива. Изотопният състав на свежите горива е представен в Таблица 4.

Таблица 3. Изотопен състав на плутония, използван за производство на смесените горива

Нуклид	МОХ	МIX след УОХ	МIX след МОХ	МIX след МIX
²³⁸ Pu	3,57%	3,57%	3,62%	4,01%
²³⁹ Pu	51,17%	51,17%	35,81%	36,71%
²⁴⁰ Pu	25,76%	25,76%	31,26%	32,00%
²⁴¹ Pu	9,93%	9,93%	11,75%	11,53%
²⁴² Pu	9,56%	9,56%	17,56%	15,75%

Таблица 4. Изотопен състав на свежите уран-плутониеви горива

Нуклид	МОХ	МIX след УОХ	МIX след МОХ	МIX след МIX
²³⁸ Pu	0,25%	0,25%	0,25%	0,28%
²³⁹ Pu	3,58%	3,58%	2,51%	2,57%
²⁴⁰ Pu	1,80%	1,80%	2,19%	2,24%
²⁴¹ Pu	0,70%	0,70%	0,82%	0,81%
²⁴² Pu	0,67%	0,67%	1,23%	1,10%
²³⁵ U	92,72%	88,54%	88,54%	88,54%
²³⁸ U	0,28%	4,46%	4,46%	4,46%

Изотопни състави на генерирания плутоний

Един от резултатите от извършените пресмятания са получените изотопни състави на плутония в крайното изведено отработено гориво за всеки цикъл.

В Таблица 5 са представени концентрациите на плутониевите изотопи в отработеното гориво на вариант 1.

Таблица 5. Концентрация на плутониевите изотопи в отработеното ядрено гориво (вариант 1), g/tTM

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
²³⁸ Pu	451,30	459,90	464,90	472,70	470,30	445,20	380,20	218,80	45,16
²³⁹ Pu	6202,00	6380,00	6380,00	6380,00	6380,00	6379,00	6376,00	6366,00	6337,00
²⁴⁰ Pu	3152,00	3153,00	3155,00	3159,00	3172,00	3211,00	3274,00	3307,00	3242,00
²⁴¹ Pu	2006,00	1997,00	1978,00	1912,00	1736,00	1238,00	471,00	16,02	0,02
²⁴² Pu	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00	1192,00

В Таблица 6 са представени концентрациите на плутониевите изотопи в отработеното гориво на вариант 2.

Таблица 6. Концентрация на плутониевите изотопи в отработеното ядрено гориво (вариант 2), g/tTM

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
²³⁸ Pu	1597,00	1618,00	1650,00	1704,00	1707,00	1617,00	1382,00	796,40	165,60
²³⁹ Pu	15830,00	15990,00	15990,00	15990,00	15990,00	15990,00	15990,00	15970,00	15920,00
²⁴⁰ Pu	13350,00	13360,00	13380,00	13430,00	13560,00	13960,00	14650,00	15110,00	14840,00
²⁴¹ Pu	8503,00	8462,00	8380,00	8102,00	7356,00	5245,00	1996,00	68,24	0,42
²⁴² Pu	7839,00	7839,00	7839,00	7839,00	7839,00	7839,00	7839,00	7839,00	7838,00

В Таблица 7 са представени концентрациите на плутониевите изотопи в отработеното гориво след вариант 3.

Таблица 7. Концентрация на плутониевите изотопи в отработеното ядрено гориво (вариант 3), g/tTM

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
²³⁸ Pu	2012,00	2039,00	2081,00	2151,00	2157,00	2043,00	1745,00	1006,00	209,10
²³⁹ Pu	8362,00	8433,00	8433,00	8433,00	8434,00	8435,00	8440,00	8453,00	8483,00
²⁴⁰ Pu	7680,00	7687,00	7699,00	7743,00	7861,00	8209,00	8808,00	9239,00	9082,00
²⁴¹ Pu	8135,00	8096,00	8018,00	7751,00	7037,00	5018,00	1910,00	65,02	0,14
²⁴² Pu	11590,00	11590,00	11590,00	11590,00	11590,00	11590,00	11580,00	11580,00	11580,00

В Таблица 8 са представени концентрациите на плутониевите изотопи в отработеното гориво след вариант 4.

Таблица 8. Концентрация на плутониевите изотопи в отработеното ядрено гориво (вариант 4), g/tTM

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
²³⁸ Pu	1840,00	1868,00	1909,00	1980,00	1988,00	1883,00	1609,00	927,50	192,90
²³⁹ Pu	8197,00	8269,00	8269,00	8269,00	8270,00	8272,00	8277,00	8293,00	8330,00
²⁴⁰ Pu	7442,00	7449,00	7464,00	7512,00	7645,00	8034,00	8705,00	9195,00	9043,00
²⁴¹ Pu	7903,00	7865,00	7790,00	7531,00	6837,00	4875,00	1855,00	63,19	0,15
²⁴² Pu	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00	12230,00

В Таблица 9 са представени относителните дялове на основните плутониеви изотопи в отработеното ядрено гориво при отворен горивен цикъл. От извеждането на горивото от активната зона до тристотната година най-висок е относителният дял на изотопа ²³⁹Pu, който нараства за периода на отлежаването. Изотопите на плутония, чиито относителен дял в концентрацията на плутоний намалява, са ²³⁸Pu и ²⁴¹Pu. От ²⁴¹Pu се получава ²⁴¹Am чрез бета-разпад, като това са причините за намаляващия му относителен дял в състава на плутония. Сходно е обяснението за намаляване на относителния дял на ²³⁸Pu (с период на полуразпад 84,4 год.), който в резултат на алфа-разпад се превръща в ²³⁴U.

Таблица 9. Относителен дял на концентрацията на плутониевите изотопи по време на отлежаването на ОЯГ (Вариант 1)

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
²³⁸ Pu	3,47%	3,49%	3,53%	3,60%	3,63%	3,57%	3,25%	1,97%	0,42%
²³⁹ Pu	47,71%	48,40%	48,44%	48,64%	49,27%	51,17%	54,53%	57,35%	58,59%
²⁴⁰ Pu	24,25%	23,92%	23,96%	24,09%	24,49%	25,76%	28,00%	29,79%	29,97%
²⁴¹ Pu	15,43%	15,15%	15,02%	14,58%	13,41%	9,93%	4,03%	0,14%	0,00%
²⁴² Pu	9,17%	9,04%	9,05%	9,09%	9,20%	9,56%	10,19%	10,74%	11,02%

В Таблица 10 са представени относителните дялове на основните плутониеви изотопи в отработеното ядрено гориво при частично затво-

рен горивен цикъл UOX-MOX (Вариант 2). Отново относителният дял на ^{239}Pu е най-висок, но в сравнение с отворения цикъл той е по-нисък, поради увеличените дялове на ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu , генерирани по време на кампанията на горивото. Това е така, тъй като в активната зона е заредено смесено уран-плутониево гориво, чиито изотопен състав отговаря на относителния дял на изотопите на плутония на десетата година от отлежаването на отработеното ураново гориво. Отново се наблюдава намаляващата зависимост във времето на относителния дял на ^{238}Pu и ^{241}Pu .

Таблица 10. Относителен дял на концентрацията на плутониевите изотопи по време на отлежаването на ОЯГ (Вариант 2)

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
^{238}Pu	3,39%	3,42%	3,49%	3,62%	3,67%	3,62%	3,30%	2,00%	0,43%
^{239}Pu	33,60%	33,83%	33,85%	33,97%	34,42%	35,81%	38,20%	40,14%	41,07%
^{240}Pu	28,33%	28,26%	28,32%	28,54%	29,19%	31,26%	35,00%	37,98%	38,28%
^{241}Pu	18,05%	17,90%	17,74%	17,21%	15,84%	11,75%	4,77%	0,17%	0,00%
^{242}Pu	16,64%	16,58%	16,59%	16,66%	16,88%	17,56%	18,73%	19,70%	20,22%

В Таблица 11 са представени относителните дялове на основните плутониеви изотопи в отработеното ядрено гориво при Вариант 3 на частично затворен горивен. В сравнение с досега разглежданите цикли, тук се наблюдават известни различия. Относителният дял на ^{242}Pu в отработеното ядрено гориво след извеждането му от активната зона е най-висок. Това се обяснява с намаляване на дяла на изотопа ^{239}Pu след три горивни кампании, в резултат на процесите на делене и захват, както и от увеличаването на концентрациите на изотопите ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu . Това нарастване се дължи на удълженото облъчване на плутония в няколко последователни кампании, което способства за натрупването на по-тежките плутониеви изотопи (деградация на изотопния състав). По време на отлежаването на горивото концентрациите на ^{238}Pu и ^{241}Pu намаляват и техните относителни дялове в състава на плутония намаляват.

В Таблица 12 са представени относителните дялове на основните плутониеви изотопи в отработеното ядрено гориво при Вариант 4 на частично затворен горивен. Относителните дялове на концентрацията на плутониевите изотопи е близка до Вариант 3 на разглежданите цикли. Разликата е в това, че относителният дял на ^{242}Pu в състава на плутония тук е най-висок поради това, че във втората горивна кампания, в която се

използват МОХ касети, намаляването на ^{239}Pu е по-силно изразено, тъй като в тях той е основният дялящ се нуклид, за разлика от касетите MIX, където освен ^{239}Pu е налично и обогатяване по ^{235}U , който в този случай е основният дялящ се изотоп.

Таблица 11. Относителен дял на концентрацията на плутониевите изотопи по време на отлежаването на ОЯГ (Вариант 3)

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
^{238}Pu	5,33%	5,39%	5,50%	5,71%	5,82%	5,79%	5,37%	3,32%	0,71%
^{239}Pu	22,14%	22,28%	22,30%	22,39%	22,75%	23,90%	25,98%	27,86%	28,90%
^{240}Pu	20,33%	20,31%	20,36%	20,56%	21,20%	23,26%	27,12%	30,45%	30,94%
^{241}Pu	21,54%	21,39%	21,20%	20,58%	18,98%	14,22%	5,88%	0,21%	0,00%
^{242}Pu	30,69%	30,62%	30,64%	30,77%	31,26%	32,84%	35,65%	38,16%	39,45%

Таблица 12. Относителен дял на концентрацията на плутониевите изотопи по време на отлежаването на ОЯГ (Вариант 4)

Нуклид	0,0 година	0,1 година	0,3 година	1,0 година	3,0 година	10,0 година	30,0 година	100,0 година	300,0 година
^{238}Pu	4,89%	4,96%	5,07%	5,28%	5,38%	5,34%	4,92%	3,02%	0,65%
^{239}Pu	21,79%	21,94%	21,96%	22,04%	22,37%	23,44%	25,33%	27,01%	27,96%
^{240}Pu	19,79%	19,77%	19,82%	20,02%	20,68%	22,76%	26,64%	29,94%	30,35%
^{241}Pu	21,01%	20,87%	20,68%	20,07%	18,49%	13,81%	5,68%	0,21%	0,00%
^{242}Pu	32,52%	32,46%	32,47%	32,59%	33,08%	34,65%	37,43%	39,83%	41,05%

Заклучение

Във всички случаи на рециклиране на плутония се наблюдава деградация на изотопния му състав. Двукратното рециклиране (варианти 3 и 4) води до значително намаляване на концентрацията на дялящи се изотопи, като с течение на времето на отлежаване доминирация изотоп е ^{242}Pu .

Източници:

[1] International Panel on Fissile Materials (2020) Fissile material stocks [<http://fissilematerials.org/>], достъпено на 10.08.2020 г.

- [2] International Panel on Fissile Materials (2007) Global Fissile Material Report 2007. Developing the technical basis for policy initiatives to secure and irreversibly reduce stocks of nuclear weapons and fissile materials, Princeton, NJ, United States
- [3] OECD NEA (2003) Plutonium Management in the Medium Term, A Review by the OECD/NEA Working Party on the Physics of Plutonium Fuels and Innovative Fuel Cycles (WPPR), NEA No. 4451, Paris
- [4] OECD NEA (1995) Physics of Plutonium Recycling, Volume I, Issues and Perspectives, A Report by the Working Party on Physics of Plutonium Recycling of the NEA Science Committee, Paris
- [5] Courtin, F. (2017) Etude de l'incinération du plutonium en REP MOX sur support d'uranium enrichi avec le code de simulation dynamique du cycle CLASS, Ecole nationale supérieure Mines-Télécom Atlantique
- [6] ORNL (2011) Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1
- [7] Найденов, И. (2018) Използване на смесени окисни горива при експлоатацията на ядрени съоръжения, Дисертация, ТУ – София, С.

Автори:

маг. инж. Златина Манчева, Агенция за ядрено регулиране, zlatina.mancheva@gmail.com

д-р инж. Ивайло Найденов, член на УС, Научно-технически съюз на енергетиците в България, +359 898 597194, ivaylo.naydenov@gmail.com